

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

AN 1988-186414 [27] WPIDS
DNC C1988-083174

TI Gamma-halo-8-hydroxy butyrate ester prodn. - by converting gamma-halo acetoacetate ester using culture broth, cells or treated cells of specified microorganism.

DC B05 D16 E16

PA (ELED) DENKI KAGAKU KOGYO KK

CYC 1

PI JP 63123387 A 19880527 (198827)* 8p <--

ADT JP 63123387 A JP 1986-268678 19861113

PRAI JP 1986-268678 19861113

AN 1988-186414 [27] WPIDS

AB JP 63123387 A UPAB: 19930923

In the prodn. of gamma-halo-beta-hydroxybutyrate ester, culture broth, cells or treated cells of bacteria capable of converting gamma-haloacetoacetate ester into corresp. gamma-halo-beta-hydroxybutyrate ester acts on gamma-haloacetoacetate ester and the prod. is collected.

Usable bacterial strains are *Aureobacterium terregens* IFO 12961, *Alcaligenes faecalis* IFO 12669, *Agrobacterium radiobacter* IAM 1526, *Arthrobacter simplex* IFO 12069, *Amorphosporangium auranticolor* JCM 3038, *Brevibacterium ammoniagenes* IFO 12071, *Bacillus subtilis* IFO 3037, *Corynebacterium glutamicum* No. 534 ATCC 13032, *Cellulomonas* sp. AKU 672, *Escherichia coli* K12 IFO 3208, *Enterobacter aerogenes* JCM 1235, *Lactobacillus amylophilus* JCM 1124, *Micrococcus luteus* IFO 12708, *Micromonospora grisea* JCM 3182, *Nocardia corallina* IAM 12121, *Pseudomonas cruciviae* IFO 12047, *Protomonas extroquens* JCM 2811, *Rhodococcus corallina* JCM 3199, *Streptomyces arabicus* JCM 4161, *Xanthomonas maltophilia* JCM 1975, etc.

USE/ADVANTAGE - Yield of gamma-halo-beta-hydroxybutyrate ester is high. Produced ester is useful as a synthetic material for medicines such as L-carnitine.

0/0

④ 日本国特許庁 (JP)

④ 特許出願公開

④ 公開特許公報 (A)

昭63-123387

④ Int.C1.
C 12 P 7/62

識別記号 庁内登録番号
7236-4B*

④ 公開 昭和63年(1988)5月27日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全8頁)

④ 発明の名称 γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルの製造法

④ 特 願 昭61-268678

④ 出 願 昭61(1986)11月13日

④ 発明者 山田 秀明 京都府京都市左京区松ヶ崎木ノ本町19-1

④ 発明者 清水 昌 京都府京都市中京区西ノ京伯楽町14

④ 発明者 三好 照三 東京都町田市旭町3丁目5番1号 電気化学工業株式会社
中央研究所内

④ 発明者 加藤 正明 東京都町田市旭町3丁目5番1号 電気化学工業株式会社
中央研究所内

④ 発明者 山本 浩幸 東京都町田市旭町3丁目5番1号 電気化学工業株式会社
中央研究所内

④ 出願人 電気化学工業株式会社

最終頁に続く

明細書

1. 発明の名称

γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルの製造法

2. 特許請求の範囲

(1) γ -ハロアセト脂肪エステルを対応する γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルに変換する能力を有するバクテリアの培養液、菌体、又は菌体処理物を γ -ハロアセト脂肪エステルに作用させ、生成物を採取することを特徴とする γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルの製造法。

3. 発明の詳細な説明

〔従来上の利用分野〕

本発明は γ -ハロアセト脂肪エステルにバクテリアを作用させて、 γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルを製造する方法に関する。 γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルは γ -カルニチン等の医薬合成原料として有用である。

〔従来の技術及び発明が解決しようとする問題〕

γ -ハロアセト脂肪エster^{1/2}を化学的に還元して

対応する γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルを製造する場合、開反応が起こりやすく、目的物の收率が低いという欠点がある。そこでこれらを解決するために、 γ - β -ヒドロキシアルコールデヒドロゲナーゼを産生する微生物の発酵培养作用を利用する方法(特開昭59-118093号公報)が提案された。しかし、報告されている微生物は、酵母、カビであり、更に、蜜柑等の果汁により改良を加えるにあたって有利なバクテリアを利用する方法の確立が求められている。

〔問題点を解決するための手段〕

本発明は、 γ -ハロアセト脂肪エステルを対応する γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルに変換する能力を有するバクテリアの培養液、菌体、又は菌体処理物を γ -ハロアセト脂肪エステルに作用させ、生成物を採取することを特徴とする γ -ハロ- β -ヒドロキシ脂肪エステルの製造法である。

本発明で用いる γ -ハロアセト脂肪エステルは、
一般式: $R_1 - CH_2CO - CH_2COOR_2$

(式中 R₁ はハロゲンで、R₂ はアルキル基、フェニル基、アリール基等の任意の有機基である)

で示される化合物である。

本発明で用いる α -ハロアセト酢酸エステルは、例えは有機酸でハロゲンとジケナンを反応させることにより得られるが、必须なら α -ハロアセト酢酸エステルから 4-6 のグリニヤール反応によっても製造することができる。

本発明で用いるバクテリアは、 α -ハロアセト酢酸エステルを対応する α -ハロ- β -ヒドロキシ酢酸エステルに变换する能力を有するバクテリアであり、例えは、

オーレオバクテリウム (Aureobacterium) ■
アルカリゲネス (Alcaligenes) ■
アグロバクテリウム (Agrobacterium) ■
アリスロバクター (Arthrobacter) ■
アモルフォスボランギウム (Amorphosporangium)

■
アムラリエラ (Ampullariella) ■

プロトモナス (Protomonas) ■
ロドコクカス (Rhodoccus) ■
セラテア (Serratia) ■
ストレプトマイセス (Streptomyces) ■
サーモアクテノミセス (Thermoactinomyces)

■
キサントモナス (Xanthomonas) ■
エルシニア (Yersinia) ■

に属するバクテリアである。更に具体的をあげると、

オーレオバクテリウム ナレゲンス IPO 12961
(Aureobacterium terregens)
アルカリゲネス フアエカリス IPO 12669
(Alcaligenes faecalis)
アグロバクテリウム ラジオバクター IAM 1526
(Agrobacterium radiobacter)
アリスロバクター シンプレクタス IPO 12069
(Arthrobacter simplex)
アモルフォスボランギウム アクランタイカター JCM 3038
(Amorphosporangium auranticolor)

ブレビバクテリウム (Brevibacterium) ■
バチルス (Bacillus) ■
コリネバクテリウム (Corynebacterium) ■
セルロモナス (Cellulomonas) ■
エシエリキア (Escherichia) ■
エンテロバクター (Enterobacter) ■
フラボバクテリウム (Flavobacterium) ■
ハフニア (Hafnia) ■
クルテア (Kurthia) ■
ラクトバチルス (Lactobacillus) ■
ミクロコクカス (Micrococcus) ■
メタノモナス (Methanomonas) ■
メチロバシルス (Methylobacillus) ■
ミクロビスピラ (Microbispore) ■
ミクロモノスコラ (Micromonospora) ■
ノカルジア (Nocardia) ■
プロテウス (Proteus) ■
シユードセナス (Pseudomonas) ■
ペデオコッカス (Pediococcus) ■
プランモノスコラ (Planomonospora) ■

アムラリエラ キリニゲリカ JCM 3329
(Ampullariella cylindrica)
ブレビバクテリウム アンモニアゲネス IPO 12071
(Brevibacterium ammoniagenes)
バチルス ズバチルス IPO 3037
(Bacillus subtilis)
コリネバクテリウム グルタニクム ATCC 13052
(Corynebacterium glutamicum)
セルロモナス エスピー AKU 672
(Cellulomonas sp.)
エシエリキア コリ K 1 2 IPO 3208
(Escherichia coli)
エンテロバクター アエロゲネス JCM 1235
(Enterobacter aerogenes)
フラボバクテリウム エステロアロマティクム IPO 3751
(Flavobacterium esteroaromaticum)
ハフニア アルベイ IPO 3731
(Hafnia alvei)
クルテア オフイ IPO 12083
(Kurthia ophi)

ラクトバクテルス アミロフィルス JCM 1124
(*Lactobacillus amylophilus*)
ミクロコッカス ルテウス IPO 12708
(*Micrococcus luteus*)
メタノモナス メテロボラ JCM 2848
(*Methanomonas methylovora*)
メチロバクテルス グリコゲネス JCM 2850
(*Methylobacter glycogenes*)
ミクロビスボラ アエラタ JCM 3076
(*Microbispora aerata*)
ミクロモノスボラ グリセア JCM 5182
(*Micromonospora grisea*)
ノカルジア コラリナ IAM 12121
(*Nocardia corallina*)
プロテウス ミラビリス IPO 3849
(*Proteus mirabilis*)
シュードモナス タルシビアエ IPO 12047
(*Pseudomonas cruciviae*)
ペデオコッカス ペントサセウス JCM 2023
(*Pediococcus pentosaceus*)

プランモノスボラ ベネズエレシエンシス JCM 3167
(*Planomonospora venezuelensis*)
プロトモナス エクストロダエンス JCM 2811
(*Protomonas extroquens*)
ロドコッカス コラリナ JCM 3199
(*Rhodococcus corallina*)
セラテア マルセジエンス IAM 1105
(*Seratia marcescens*)
ストレプトマイセス アラビクス JCM 4161
(*Streptomyces arabicus*)
テーセアタネノミセス サッカリ JCM 3157
(*Thermactinomyces sacchari*)
キサントモナス マルトフィリア JCM 1975
(*Xanthomonas maltophilia*)
エルシニア ルケリ JCM 2429
(*Yersinia ruckeri*)

等である。これらの菌株は財團法人発酵研究所 (IPO)、東京大学応用微生物研究所 (IAM)、または理化研究所微生物系保存部 (JCM)、ATCC 等に、それぞれの番号で保管されており、

必要に応じて容易に入手できる菌株である。このうち、セルロモナスエスピーアEU 672株は本発明者が見いだした菌株であり、工業技術院微生物工学技術研究所に登録番号9026番で登録されている。生物学的性質を次に示す。

1. 形態

(1) 菌胞の形及び大きさ：

Old culture : 球菌、0.5 ~ 0.6 μm

Fresh culture : 不定形、球菌、径0.5 ~ 0.7 μm、長さ > 2.0 μm

(2) 多形性の有無：有

(3) 運動性の有無：有

(4) 細毛の有無：有

(5) 鞭毛の有無：無

(6) グラム染色性：陽性

2. 各所で得た生育状況

(1) 内汁寒天平板培養

コロニーの色：淡色 (2 日間培養)

コロニーの形狀：円形、平滑

コロニーの盛起：中央凸状

コロニーの周縁：全縁

- (2) 内汁板体培養
- 菌塊、やや沈殿有
- (3) 内汁ゼラチン溶剤培養：液化する
- (4) リトマスミルク：酸化生成する

3. 生理学的性質

- (1) 硝酸塩の還元：有
- (2) MRテスト：陰性
- (3) VPテスト：陰性
- (4) インドールの生成：陰性
- (5) 優化水素の生成：陰性
- (6) テンプンの加水分解：陽性
- (7) クエン酸の利用：陰性
- (8) 巴素の生成：無
- (9) クレアーゼ：陰性
- (10) オキシダーゼ：陰性
- (11) カタラーゼ：陰性
- (12) 酸素に対する抵抗：好気性
- (13) 生育の範囲

耐及 37 ~ 42 °C

pH 6.0 ~ 7.5

④ OPテスト : 発酵
 ⑤ セルロースに対する作用 : 防性
 ⑥ 糖類からの糖及びガスの生成の有無

糖類	糖	ガス
① L-アラビノース	+	-
② Arabin	+	-
③ セルロビオース	+	-
④ グキストリノース	+	-
⑤ D-フラクトース	+	-
⑥ D-ガラクトース	+	-
⑦ D-グルコース	+	-
⑧ グリコーゲン	+	-
⑨ マルトース	+	-
⑩ テンブン	+	-
⑪ ショ糖	+	-
⑫ トレハロース (trehalose)	+	-
⑬ キシロース	+	-
⑭ グリセロール	-	-
⑮ イヌリン	-	-

⑯ 乳糖 - -
 ⑰ マニトール - -
 ⑱ マヌノース - -
 ⑲ α -メチルグルコシド - -
 (α -methylglucoside)
 ⑳ ラフィノース - -
 ㉑ ラムノース - -
 ㉒ ソルビトール - -
 ㉓ ソルボース - -
 ㉔ DNA 分解性 : 防性
 ㉕ カゼイン分解性
 アミノペプチダーゼ活性 : 防性
 ㉖ 耐塩性 : NaCl 5% まで生育する
 ㉗ 脂肪酸のアミノ酸 : オルニチン
 ㉘ 脂肪分量 : 脂肪
 ㉙ DNA の GC 含量 : 74.7%
 ㉚ スキムミルク中における熱処理 :
 63°C、30 分処理で生存
 以上の生物学的性質により、本菌はコリオフオルムバクテリアに属し、山田らの方法 (J. Gen.

Appl. Microbiol., 18, 417 (1972)

に当づいて検索すると

① セルロース分解活性が欠損
 ② 脂肪分量が脂質
 ③ 脂肪酸のアミノ酸がオルニチン
 ④ GC 含量が 71 ~ 73% と細胞が狭く高含
 量

⑤ 广範囲の糖から発酵により糖を作り
 という点から、第 4 グループに属し、セルロソナ
 スエスピーと、同定された。

上記のバクテリアは一般的な性質として自然あるいは人工的手段により異異を起こし得るが、ア-ハロアセト酸エスチルを還元してア-ハロ-ア-ヒドロキシ酸エスチルに変換するものすべて本発明の製造法に利用し得る。

本発明で用いるバクテリアは常法に従つて培養することができる。培養に用いられる培地はバクテリアの生育に必要な炭水化合物、蛋白質、無機物質等を含む通常の培地である。更にビタミン、アミノ酸等の有機酸盐栄養素を添加すると菌エシード

が得られる場合が多い。

培養は好気的条件下に用 3 ~ 8、温度 10 ~ 40°C の適当な範囲で振盪しつつ 1 ~ 10 日間培養を行う。反応にあたつては、バクテリアの培養液、培養液から分離採取した培養細胞などいずれも使用できる。また菌体処理物として、凍結乾燥やアセトン乾燥などの方法で得た乾燥菌体、菌体を磨碎あるいは自己消化、超音波処理などの方法で得た菌体破砕液のほか、ア-ハロアセト酸エスチルを対応するア-ハロ-ア-ヒドロキシ酸エスチルに変換する酵素活性を有する酵素タンパク区分、更にはこれら菌体または菌体処理物の固定化物、その他いすれも使用できる。

ア-ハロアセト酸エスチルを対応するア-ハロ-ア-ヒドロキシ酸エスチルに変換する方法は、水性媒液中にてア-ハロアセト酸エスチルと上記バクテリアの培養液、菌体、菌体処理物あるいはこれらを公知の方法で固定化したものと接触させれば良い。

かかる反応時の水性媒液としては、水、緩衝液

および市販有機触媒が使用できる。

上記バタナリアヒテ-ハロアセト触媒エステルに作用させるには、油溶、メヒ3~8、及反応温度を10~60°Cの範囲で制御しつつ行なう。

反応系に対してア-ハロアセト触媒エステルはそのまま、あるいは触媒に溶解するか、あるいは分離させて使用する。

反応系のエステルムラは油溶0.001~5.0%程度の触媒が良い。かかるア-ハロアセト触媒エステルの濃度は反応の任意の段階で可能であり、一括、逐段、分段のいずれの手段でも実現できる。

反応時にケルコース等の糖類や、微生物の栄養液、界面活性剤等を共存させて反応を行なうこともできる。反応時間は、触媒等条件により調整できるが、長くとも48時間程度を行なえば、ア-ハロアセト触媒エステルは対応するア-ハロ-β-ヒドロキシ触媒エステルに変換される。

このようにして得られたア-ハロ-β-ヒドロキシ触媒エステルを粗製液又は反応液より採取するには、固体又は固形処理物を遠心分離や膜過

過等の方法によって除却し、エーテル、四塩化炭素、ベンゼン、酢酸エチル等の有機溶媒を用いて抽出する方法等の通常の方法を採用することができる。

【実施例】

次に、実施例によつて本発明の方法を更に詳しく説明する。

実施例1

ケルコース5gを油溶、コーン・スタイード・リカ-5%をからなる培地(HE 6.5)5mlを以て管に吹き、管に示した微生物を種植して28°Cで48時間振とう培養を行なつた。

この系にア-タロロアセト触媒メチル2.5%を添加し、さらに24時間振とう培養を行なつた。

得られた反応液を遠心分離で除菌後処理した後、反応液2mlを酢酸エチル4mlで抽出し、ガスクロマトグラフィー(柱材: 0C-9 APP, PEG 20M × 1 =, 150°C, N₂ 30ml/min)で分析した。結果を表に示す。

実施例2

ア-タロロアセト触媒エテルを基剤に用いて実施例1と同様に反応を行い、分析した。結果を表に示す。

以下 余白

バクテリア	生菌量 (×10 ⁶ / ml)	
	実測例 1	実測例 2
	アーチロローバービ ドロキシ酸脱メチル	アーチロローバービ ドロキシ酸脱エチル
1. オーレオバクテリウム アレゲンス IPO 12961	1.1	1.0
2. アルカリオネス フエカリス IPO 12669	2	2
3. アプロバクテリウム ラジオバクター IAM 1526	1.1	1.0
4. アクスロバクター リンブレクタス IPO 12069	2.2	2.0
5. アセバクテスバランシウム ブラクランティカム JCM 3038	9	8
6. アブロバクテラ マリオバクター JCM 5329	2	2
7. プレビバクテリウム アンカニアゲネス IPO 12071	8	8
8. バクテルス ブチラス IPO 3037	6	6
9. コリオバクテリウム ブラクタム ATCC 15032	2.5	2.1
10. セハロバクテス エスピー AKO 672	3.6	3.3
11. エシエリヤツ コ 12 IPO 3208	0.4	0.5
12. エンテロバクター アエロバクス JCM 1235	0.5	0.5
13. フラバクテリウム エステロアラテリウム IPO 3751	9	8
14. ハフニア ハフニ JPO 3751	3	3
15. タベテ ヴィ JPO 12083	7	7
16. ラクトバクテルス アロフィラス JCM 1124	5	5

バクテリア	生菌量 (×10 ⁶ / ml)	
	実測例 1	実測例 2
	アーチロローバービ ドロキシ酸脱メチル	アーチロローバービ ドロキシ酸脱エチル
17. ミクロコッカス ルテウス IPO 12708	2.6	2.4
18. メタノセナス メタロボラ JCM 2848	1	1
19. メタロバクテルス ブリコゲネス JCM 2850	2	2
20. ミクロビスバクテリウム アエラ JCM 3076	1	1
21. ミクロセノスバクテリウム ブリヤツ JCM 5182	2	2
22. ノカルシア コラリナ IAM 12121	7	7
23. ナロテクス リラビルス IPO 3849	0.4	0.5
24. シュードモナス タルシビアエ IPO 12047	3	3
25. ベテオコッカス ベントサセウス JCM 2023	2	2
26. ナラノセノスバクテリウム ベネズエレンジス JCM 5167	1	1
27. ナロトモナス エクストロクエソス JCM 2811	1	1
28. ロドコッカス コラリナ JCM 5199	2.3	2.1
29. セラテア マルセシエンシス IAM 1105	1.0	1.0
30. ストレプトマイセス アラビタス JCM 4161	0.8	0.7
31. ターキアタネノミセス タフカリ JCM 3157	0.6	0.5
32. キナントモナス マルトフィリア JCM 1975	0.6	0.5
33. エルシニア ルケリ JCM 2429	5	5

実施例3

グルコース5重量%、コーン・スタイープリカー-5重量%からなる培地(pH 6.5) 5mlを試験管入り、セルロースナスエスピーアク672(株式会社新興化学9026号)を粗粒して28℃で24時間培養とう培養を行ない結果収率を得た。

次に上記と同じ組成の培地100mlを500ml密閉口フラスコに取り、粗培養液5mlを添加して28℃で24時間とう培養を行なつた。

得られた培養液を遠心分離し、0.9% NaCl水で洗浄したのち、1(v/v) 40%グルコースを含む0.1Mリソ酸緩衝液(pH 6.0) 100mlに添加し、ア-クロロアセト酸エチル1.0gを添加し、通気、振とうしながら18時間反応を行なつた。

得られた反応液を遠心分離で粗画処理した後、粗画エチル300ml(100ml × 3回)で抽出を行なつた。この粗画エチル層に無水硫酸マグネシウムを添加、脱水したのち、減圧濃縮して0.9%の粗次生成物を得た。このものを減圧昇華してIR(島津IR-435)、NMR(日本電子PUX

実施例3と同様にして反応を行ない、ガスクロマトグラフィー(島津GC-9APP、OV-1×1m、125℃、N₂30ml/分)、IR(島津IR-435)、NMR(JEOL GX-270)で確認したところ、ア-クロロ-ア-ヒドロキシ酸オクチルであることを確認した。また、反応収率は50%であつた。

尚、過剰は1mlの10% Tween 80(KAO-ATLAS)で乳化して反応系に添加した。

実施例6

実施例3と同様にして粗たんぱく体10gを20mlの0.1Mリソ酸緩衝液(pH 6.5)に加え、水水で冷却しながら5分間の超音波処理を4回行い、遠心分離で不溶物を除去することにより、粗画液を得た。

この粗画液10mlにNADPH(シグマ社) 200μlを加え、ア-クロロアセト酸エチル20mlを4時間で分離し、さらに4時間反応を行つた後、実施例3と同様にして反応液を分析したところ、ア-クロロ-ア-ヒドロキシ酸エチルの収率は

60%、ガスクロマトグラフィー(島津GC-9APP、PBO 20M × 1m、150℃、N₂30ml/分)で確認したところ、ア-クロロ-ア-ヒドロキシ酸エチルであることを確認した。

NMR

δ (CDCl₃ 中) : δ(ppm)
1.25(3H, t), 2.60(2H, q),
3.35(1H, s, exchangeable, OH)
3.60(2H, q), 4.2(2H, q)

GC

R.T(分) 4.6

実施例4

イクロコッカス ルテウス IPO 12708を実施例3と同様にして培養と反応を行ない生成物を分離したところ0.85gの粗次生成物を得た。さらに、実施例3と同様の方法で同定したところ、ア-クロロ-ア-ヒドロキシ酸エチルであることを確認した。

実施例5

ア-クロロアセト酸オクチルを試料に用いて、

90%であつた。

実施例7

実施例3と同様にして培養し、得られた培養液にシユーグロース10gを添加し、油気培養しながらア-クロロアセト酸エチル1gを8時間で分離し、さらに油気培養を8時間行い実施例1と同様にして反応液を分析したところア-クロロ-ア-ヒドロキシ酸エチルの収率は40%であつた。

〔発明の効果〕

本発明によればア-ハロアセト酸エチルからア-ハロ-ア-ヒドロキシ酸エチルを高収率で得ることができ、工業的に有利である。

第1頁の続き

④Int.Cl. ⁴	識別記号	序内整理番号
#(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:01)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:05)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:06)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:07)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:13)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:15)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:185)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:20)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:225)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:265)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:29)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:365)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:37)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:38)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:425)	
(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:465)	

④Int.Cl. ⁴	識別記号	序内整理番号
-----------------------	------	--------

(C 12 P	7/62	
C 12 R	1:64)	